



大连化物所在低温液相费托合成合作研究中取得进展

文章来源：大连化学物理研究所

发布时间：2013-03-18

【字号：小 中 大】

近日，中科院大连化学物理研究所催化基础国家重点实验室理论催化研究组李微雪团队和北京大学化学与分子工程学院马丁教授、寇元教授团队，以及美国橡树岭国家实验室合作，在高效钴基催化剂低温费托合成制液体燃料研究中取得进展，研究成果以全文发表在《美国化学会志》(*J. Am. Chem. Soc.* 135 (2013) 4149-4158, doi: /10.1021/ja400771a)。

煤、生物质、页岩气来源的合成气，经费托合成制液体燃料是缓解目前石油资源短缺、满足能源需求急剧增加的重要途径。钴基催化剂因其较高的长链烷烃选择性和活性、稳定性，长期以来受到关注。费托合成反应是一个低温有利的强放热反应，寻找低温、高活性的钴基催化剂是目前研究的关键。

北京大学团队发展了一步加氢-还原方法，在Co催化剂中加入摩尔比为5%-10%的贵金属Pt，成功地合成了Pt-Co双金属纳米催化剂，在413-433K温度下实现了高效液相费托合成：CO转化率达到1 mol CO/mol Co⁻¹ · h⁻¹，C2-5和C5+选择性达到17%和70%。而在对照实验中，分步还原的Pt-Co双金属催化剂及纯Co纳米催化剂在相同温度下CO转化率仅为0.10 mol CO/mol Co⁻¹ · h⁻¹及0.09 mol CO/mol Co⁻¹ · h⁻¹。原子分辨球差校正扫描透射电镜表明，Pt-Co双金属催化剂存在多种结构分布；而控制合成实验排除了Co纳米粒子负载的单原子Pt作为催化活性中心的可能。

李微雪研究团队在基于原子分辨的球差校正扫描透射电镜和同步辐射X-射线吸收精细结构光谱表征基础上，以CO分子的活化为探针反应，展开了大量的理论计算研究。从理论上排除了实验上所观察到的大量不同结构的可能贡献，最终确定铂-钴双金属催化剂的活性中心为外延生长在Pt纳米粒子表面上的2-3原子层厚的金属钴薄膜。其高活性来源于铂-钴界面晶格失配导致钴薄膜处于拉伸状态，改变了CO断键过渡态的结构，降低了反应活化能，从而显著提升了反应活性。李微雪研究团队最近几年集中力量在合成气选择性转化的理论研究上。2011年通过计算发现，在铈和钴基催化剂上，甲酰基在碳链增长中起着重要的作用 (*Angew. Chem. Int. Ed*50 (2011) 5335-5338, DOI: /10.1002/anie.201100735)。

该工作为利用双金属的界面晶格失配效应来调控纳米催化剂的活性提供了新思路。研究中所采取的“材料可控合成→催化反应→高分辨电镜、原位表征→理论计算反应机理”策略，也是目前多相催化研究的趋势和发展方向。

该工作得到国家自然科学基金委杰出青年基金、科技部973项目资助。科学计算在天津超算中心进行，透射电镜和同步辐射实验分别在美国橡树岭国家实验室和布鲁克海文国家实验室完成。

